

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

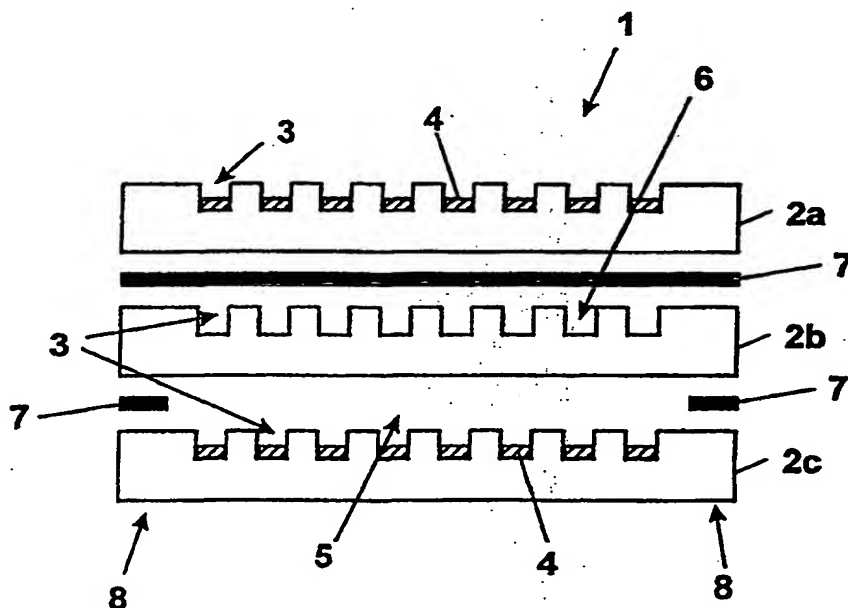
(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>B01J 19/00, B23K 1/00</b>		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 99/64146</b>
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/03737		(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 16. Dezember 1999 (16.12.99)	
(22) Internationales Anmeldedatum: 29. Mai 1999 (29.05.99)		(81) Bestimmungsstaaten: US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).	
(30) Prioritätsdaten: 198 25 102.5 5. Juni 1998 (05.06.98) DE		Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): DBB FUEL CELL ENGINES GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG [DE/DE]; Neue-Strasse 95, D-73230 Kirchheim (DE).			
(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LIPPERT, Marco [DE/DE]; Silheimerweg 1, D-89346 Bibertal (DE). TISCHLER, Alois [DE/DE]; Helt 14, D-94501 Aidenbach (DE). WEISSER, Marc [DE/DE]; Im unteren Feld 4, D-73270 Owen (DE).			
(74) Anwälte: KOCHER, Klaus-Peter usw.; DaimlerChrysler AG, Intellectual Property Management, FTP - C 106, D-70546 Stuttgart (DE).			

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING A COMPACT CATALYTIC REACTOR

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINES KOMPAKTEN KATALYTISCHEN REAKTORS

(57) Abstract

The invention relates to a method for producing a compact catalytic reactor(1). At least partially structured plates (2a-c) are stacked on top of each other to form alternate reaction chambers (5) and heat transfer chambers (6). A catalyst (4) is introduced into the reaction chambers (5). The plates (2a-c) are provided with a soldering layer (7) at least in the edge area (8) but not in the area provided with the catalyst, and after they have been stacked on top of each other, are soldered to a reactor. The edge area (11) of the plates (2a-c) can also be bent up in order to facilitate positioning and increase tightness. Unstructured intermediate plates (9) may be provided respectively between the structured plates (2a-c).



BEST AVAILABLE COPY

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines kompakten katalytischen Reaktors (1), wobei durch Aufeinanderstapeln von zumindest teilweise strukturierten Platten (2a-c) abwechselnd Reaktions- (5) beziehungsweise Wärmeträgerräume (6) ausgebildet werden, in den Reaktionsräumen (5) ein Katalysator (4) eingebracht wird, die Platten (2a-c) zumindest im Randbereich (8), jedoch nicht im mit Katalysator versehenen Bereich mit einer Lotschicht (7) versehen werden, und nach dem Aufeinanderstapeln zu einem Reaktor verlötet werden. Zusätzlich können die Platten (2a-c) zur einfachen Positionierung und zur Erhöhung der Dichtigkeit mit einem aufgebogenen Randbereich (11) versehen werden. Schließlich kann auch zwischen den strukturierten Platten (2a-c) jeweils eine unstrukturierte Zwischenplatte (9) vorgesehen werden.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Verfahren zur Herstellung eines kompakten  
katalytischen Reaktors

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines kompakten katalytischen Reaktors gemäß Patentanspruch 1.

Solche kompakten katalytischen Reaktoren, sogenannte Mikroreaktoren, bestehen aus einzelnen dünnen, fein strukturierten Platten oder Blechen. Die Strukturierung dient zur Bildung feiner Strömungskanäle zur Verteilung der benötigten Medien. Die Bleche werden übereinander gestapelt und mit Grund- und Deckplatten sowie mit Zu- und Abführungen für die Medien versehen, so daß ein kompaktes Bauteil entsteht. Anschließend werden die Bleche gasdicht zusammengefügt, vorzugsweise durch Diffusionsschweißen. Aus der WO 88/06941 ist beispielsweise ein Mikrowärmetauscher aus mikrostrukturierten Blechen bekannt, der durch Löten zusammengefügt ist.

Es ist die Aufgabe der Erfindung, ein Verfahren zu schaffen, mit dem ein kompakter katalytischer Reaktor einfach und preiswert hergestellt werden kann.

Diese Aufgabe wird durch ein Verfahren mit den Merkmalen des Patentanspruchs 1 gelöst.

Durch das beanspruchte Herstellverfahren kann ein kompakter katalytischer Reaktor mit ausreichender Dichtigkeit und mechanischer Festigkeit hergestellt werden. Da bei allen Platten zumindest im Randbereich eine Lötsschicht vorgesehen ist werden benachbarte Platten zumindest in diesem Randbereich durch den Lötvorgang gasdicht miteinander

verbunden, so daß sich zwischen solchen benachbarten Platten jeweils abgeschlossene Reaktions- beziehungsweise Wärmeträgerräume ausbilden. Gleichzeitig wird in den Bereichen der Platten, in denen Katalysatormaterial vorgesehen ist, auf das Einbringen einer Lotschicht verzichtet. Dadurch kann eine Schädigung des Katalysatormaterials durch das Lotmaterial vermieden werden.

Die Festigkeit in dem Bereich der Platten, der mit Katalysator versehen ist, wird ausschließlich durch mechanischen Kontakt hergestellt. Werden zusätzlich alle Platten, die kein Katalysatormaterial aufweisen, vollständig mit einer Lotschicht versehen, so entstehen auch in den zentralen Bereichen dieser Platten Lotverbindungen, so daß die mechanische Festigkeit des Reaktors weiter verbessert werden kann.

Durch das Aufbiegen der Randbereiche können die Platten beim Aufeinanderstapeln auf einfache Art und Weise positioniert und während des Lötvorgangs fixiert werden. Gleichzeitig wird die Dichtigkeit verbessert.

Weiter Vorteile und Ausgestaltungen der Erfindung gehen aus den Unteransprüchen und der Beschreibung hervor. Die Erfindung ist nachstehend anhand einer Zeichnung näher beschrieben, wobei

Fig. 1 eine Prinzipdarstellung eines erfindungsgemäß herzustellenden Reaktors,

Fig. 2 eine weitere Ausgestaltung eines erfindungsgemäß herzustellenden Reaktors, und

Fig. 3 ein weiteres Ausführungsbeispiel eines erfindungsgemäß herzustellenden Reaktors mit Zwischenschichten,

Fig. 4 ein viertes Ausführungsbeispiel eines erfindungsgemäß herzustellenden Reaktors mit Zwischenschichten und

Fig. 5 ein fünftes Ausführungsbeispiel eines erfindungsgemäß hergestellten Reaktors mit gewellten Blechen zeigt.

Der Aufbau von plattenförmigen katalytischen Reaktoren ist aus dem Stand der Technik allgemein bekannt und wird daher hier nur noch kurz anhand von Fig. 1 erläutert. Der insgesamt mit 1 gekennzeichnete katalytische Reaktor ist durch Aufeinanderstapeln von Platten, vorzugsweise in Form von Metallfolien 2a - 2c aufgebaut. Die Metallfolien 2a - 2c weisen zumindest in einen Teil der Oberfläche eingearbeitete Mikrostrukturen, beispielsweise in Form von Kanälen auf 3. Die Kanäle 3 dienen zur besseren Verteilung der beteiligten Reaktionsmedien. Durch Aufeinanderstapeln der Metallfolien 2a - 2c wird zwischen den einzelnen Metallfolien 2a - 2c ein mit einem Katalysatormaterial 4 versehener Reaktionsraum 5 und ein von einem Wärmeträgermedium durchströmter Wärmeträgeraum 6 ausgebildet. Der Stapel von Metallfolien 2a - 2c wird in Stapelrichtung jeweils durch nicht dargestellte Endplatten abgeschlossen. Die Zuführung der Reaktionsmedien kann in beliebiger Form innerhalb oder außerhalb des Plattenstapels erfolgen. Vorzugsweise erfolgt die Zufuhr durch sich in Stapelrichtung erstreckende, zur Vereinfachung jedoch nicht dargestellte Zu- und Abführkanäle, die durch entsprechende Bohrungen in den Metallfolien 2a - 2c gebildet werden. Die Zu- und Abfuhr der Reaktionsmedien zu und aus diesen Versorgungskanälen erfolgt über die Endplatten.

Prinzipiell hat ein solcher katalytischer Reaktor 1 die Funktion, thermische Energie aus dem Reaktionsraum 5 über ein Wärmeträgermedium abzuführen (exotherme Reaktion) oder in den Reaktionsraum 5 einzubringen (endotherme Reaktion).

Als Wärmeträgermedium kann beispielsweise ein Thermoöl verwendet werden. Bei endothermen Reaktionen ist es aber auch möglich, die benötigte thermische Energie direkt im Wärmeträgeraum 6 zu erzeugen. Hierzu wird ein chemischer Brennstoff als Wärmeträgermedium in den Wärmeträgeraum 6 geführt und dort mit Hilfe eines geeigneten Katalysators unter Zugabe von Sauerstoff oxidiert. Hierzu können beispielsweise platinhaltige Katalysatoren verwendet werden. Die bei der Oxidation frei werdende Energie wird auf den Reaktionsraum 5 übertragen. Das Katalysatormaterial 4 kann in beliebiger Form, beispielsweise als Schüttung oder Pellets, aber auch durch Beschichten der Metallfolien in den Reaktionsraum 5 eingebracht werden.

Im Reaktionsraum 5 können verschiedene Reaktionen ablaufen. Beispielsweise kann dort aus einem kohlenwasserstoffhaltigen Brennstoff durch Wasserdampfreformierung und/oder partielle Oxidation ein wasserstoffreiches Gas erzeugt werden. Weiterhin kann dort in einem wasserstoffreichen Gas enthaltenes Kohlenmonoxid durch selektive Oxidation entfernt werden. Schließlich kann im Reaktionsraum 5 ein Brennstoff möglichst vollständig oxidiert werden (katalytischer Brenner), wobei die frei werdende thermische Energie entweder auf ein Wärmeträgermedium übertragen oder direkt zum Verdampfen eines flüssigen Mediums verwendet wird. Vorzugsweise werden solche katalytischen Reaktoren in sogenannten Gaserzeugungssystemen für mobile Brennstoffzellenanwendungen eingesetzt, wobei in diesen Gaserzeugungssystemen aus einem Brennstoff, beispielsweise Methanol, der für die Brennstoffzelle benötigte Wasserstoff erzeugt wird. Selbstverständlich kann ein erfindungsgemäß hergestellter katalytischer Reaktor 1 jedoch auch für beliebige andere Anwendungen verwendet werden.

Bei der Herstellung des katalytischen Reaktors 1 werden die einzelnen Metallfolien 2a - 2c durch Löten gasdicht miteinander verbunden. Hierzu wird zwischen benachbarten

Metallfolien 2a - 2c jeweils eine Lotschicht 7 eingebracht. Diese Lotschicht 7 erstreckt sich zumindest über den Randbereich 8 der Metallfolien 2a - 2c. Sie kann in Form einer Lötfolie oder durch Beschichten der Ober- und/oder Unterseite der Metallfolien 2a - 2c eingebracht werden. Im Reaktionsraum 5 wird die Lotschicht 7 in dem Bereich, in dem Katalysatormaterial 4 angeordnet ist, ausgespart. Sie weist daher eine entsprechende Ausnehmung 10 auf, die beispielsweise durch Stanzen in die Lotschicht 7 eingebracht wird. Erfolgt die Zu- und Abfuhr der Reaktionsmedien wie oben beschrieben über in Stapelrichtung verlaufende Versorgungskanäle, so wird der Umfang eines Teiles der Bohrungen ebenfalls mit einer Lotschicht 7 versehen. Ist eine Bohrung mit einer Lotschicht 7 versehen, so ist die entsprechende Versorgungsleitung nach dem Zusammenbau gegen den zugehörigen Reaktions- beziehungsweise Wärmeträgerraum 5, 6 abgedichtet. Ist eine Bohrung nicht mit einer Lotschicht 7 umgeben, so kann ein Austausch der Medien zwischen der Versorgungsleitung und dem zugehörigen Reaktions- beziehungsweise Wärmeträgerraum 5, 6 erfolgen.

Zur Herstellung des katalytischen Reaktors 1 können beispielsweise ansich bekannte Vakuum- oder Schutzgas-Lötverfahren eingesetzt werden, wobei die einzelnen Platten 2a - 2c durch Druck und Temperatur miteinander verlötet werden. Hierbei wird beispielsweise bei einer Temperatur von 700° - 1200° C gearbeitet. Die Temperatur muß jedoch so gewählt werden, daß das verwendete Katalysatormaterial 4 nicht beschädigt wird. Als Katalysatormaterial 4 kann beispielsweise ein platinhaltiger Edelmetallkatalysator auf einem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Trägermaterial verwendet werden. Die Metallfolien 2a - 2c bestehen vorzugsweise aus Cr-Ni-Stahl mit einer Dicke von 0,3 - 0,5 mm. Die Platten 2a - 2c können jedoch auch aus einem anderen für diesen Einsatzzweck geeigneten Material bestehen. Die Lotschicht 7, vorzugsweise in Form eines Kupfer- oder Nickellotes, wird für den Vakuum-Lötprozeß optimiert und weist

vorzugsweise eine Dicke von 30 - 100  $\mu\text{m}$  auf. Wird die Lotschicht 7 durch eine Beschichtung auf die Platten 2a - c aufgebracht, so weist die Schicht vorzugsweise eine Dicke von 10 - 40  $\mu\text{m}$  auf. Um zu verhindern, daß Lotmaterial beim Lötvorgang in Kontakt mit dem Katalysatormaterial 4 kommt, wird im Bereich des Reaktionsraumes 5 die Lotschicht 7 lediglich im Randbereich 8 der Metallfolien vorgesehen. Durch den Kontakt mit dem Lötmaterial könnte das Katalysatormaterial 4 nämlich zerstört oder zumindest in seiner Funktion beeinträchtigt werden.

Das in Fig. 1 dargestellte Ausführungsbeispiel zeigt exemplarisch den Aufbau eines erfindungsgemäßen katalytischen Reaktors 1 anhand dreier Metallfolien 2a - 2c. In Wirklichkeit weist ein katalytischer Reaktor 1 im allgemeinen eine Vielzahl solcher Metallfolien 2a - 2c auf und wird jeweils durch Endplatten begrenzt. In Fig. 1 sind alle Metallfolien 2a - 2c auf der Oberseite mit Kanälen 3 versehen. Zwischen den Metallfolien 2a und 2b bildet sich nach dem Zusammenfügen ein Wärmeträgerraum 6 aus. Die in der Metallfolie 2c eingebrachten Kanäle 3 sind zumindest teilweise mit einem Katalysatormaterial 4 gefüllt oder entsprechend beschichtet. Daher bildet sich zwischen den beiden Metallfolien 2b und 2c nach dem Zusammenfügen ein Reaktionsraum 5 aus. Während zwischen den Metallfolien 2a und 2b, also im Bereich des Wärmeträgerraumes 6, eine durchgehende Lötfolie 7 vorgesehen ist, erstreckt sich die entsprechende Lötfolie 7 zwischen den Metallfolien 2b und 2c, also im Bereich des Reaktionsraumes 5, nur über den Randbereich 8. Wird die Lotschicht 7 in Form einer Lötfolie eingebracht, so wird die Lötfolie entsprechend ausgestanzt. Wird die Lotschicht 7 durch Beschichten aufgebracht, so wird in dem später mit Katalysatormaterial 4 versehenen Bereich eine Abdeckung angeordnet. Diese kann dann vor dem Zusammenfügen der Metallfolien entfernt werden, so daß im mit Katalysatormaterial 4 versehenen Bereich des Reaktionsraumes 5 keine Lotschicht 7 vorhanden ist. In den Ausführungsbeispielen sind die Kanäle 3 zur Vereinfachung



alle äquidistant und mit gleichem Querschnitt dargestellt. In Wirklichkeit können diese Kanäle 3 in beliebiger Anordnung und mit variablen Querschnitten in die Metallfolien 2a - 2c eingebracht werden. Insbesondere können auch größere zusammenhängende Vertiefungen vorgesehen werden. Nach dem Zusammenbau können die Reaktionsmedien dann in Gleich-, Gegen- oder auch in Querrichtung relativ zueinander geführt werden.

Abweichend von Fig. 1 weisen die Metallfolien 2a - 2c im Ausführungsbeispiel gemäß Fig. 2 einen aufgebogenen Randbereich 11 auf. Ansonsten sind gleiche Teile mit entsprechenden Bezugszeichen gekennzeichnet. Das Umbiegen der Randbereiche 11 erfolgt vorzugsweise vor dem Aufeinanderstapeln der Metallfolien 2a - 2c. Durch das Umbiegen der Randbereiche 11 erhalten die Metallfolien 2a - 2c eine Art Wannenform. Dadurch werden die Metallfolien 2a - 2c beim Aufeinanderstapeln automatisch gegeneinander justiert. Außerdem wird dadurch die Dichtigkeit der Anordnung verbessert. Auch in diesem Ausführungsbeispiel kann die Lotschicht 7 in Form einer Lötfolie oder durch Beschichten der Metallfolien 2a - 2c eingebracht werden.

In den katalytischen Reaktoren 1 gemäß den Fig. 3 und 4 sind zusätzlich zwischen den einzelnen strukturierten Metallfolien 2a - 2c unstrukturierte Zwischenplatten 9 angeordnet. Abweichend von den Fig. 1 und 2 weisen die Metallfolien 2a - 2c auf beiden Seiten Kanäle 3 auf, wobei im dargestellten Ausführungsbeispiel die jeweils oberen Kanäle 3 im Zusammenspiel mit der jeweils benachbarten Zwischenplatte 9 einen Reaktionsraum 5 und die jeweils unteren Kanäle 3 entsprechend einen Wärmeträgeraum 6 ausbilden. Die Zwischenplatte 9 ist daher auf der Oberseite, also der dem Wärmeträgeraum 6 zugewandten Fläche vollständig mit einer Lotschicht 7 versehen, während die Lotschicht 7 auf der Unterseite, also der dem Reaktionsraum 5 zugewandten Fläche, eine Ausnehmung 10 aufweist. Somit kommt auch bei dieser Anordnung mit

Zwischenplatte 9 das Katalysatormaterial 4 im Reaktionsraum 5 nicht in Kontakt mit der Lotschicht 7. Selbstverständlich kann die Anordnung des Reaktionsraumes 5 beziehungsweise des Wärmeträgerraumes 6 auch vertauscht werden. Außerdem müssen die Räume 5, 6 nicht in der dargestellten Reihenfolge angeordnet werden. Die Reihenfolge kann vielmehr frei gewählt werden. Auch ist es möglich, in einer Metallfolie 2a - 2c jeweils auf beiden Seiten Reaktionsräume 5 oder Wärmeträgerräume 6 vorzusehen.

Prinzipiell ergibt sich durch das beanspruchte Herstellverfahren ein katalytischer Reaktor 1, bei dem die einzelnen Metallfolien 2a - 2c zumindest im Randbereich 8, 11 durch eine Lotverbindung fest und gasdicht miteinander verbunden sind. Auch im Bereich der Wärmeträgerräume 6 ergeben sich feste Lotverbindungen zwischen den Erhebungen im Wärmeträgeraum 6 und der unstrukturierten Oberfläche der benachbarten Metallfolie 2a - 2c beziehungsweise Zwischenplatte 9. Im Bereich der Reaktionsräume 5 ergeben sich allerdings nur mechanische Verbindungen. Diese sind aber in Kombination mit den vorhandenen Lotverbindungen für die geforderte Belastbarkeit der katalytischen Reaktoren 1 ausreichend. Im Ausführungsbeispiel gemäß Fig. 4 weisen auch die Zwischenplatten 9 einen aufgebogenen Randbereich 11 auf. Unter Umständen ist es wünschenswert, zwischen den strukturierten Oberflächen der Metallfolien 2a - 2c und den unstrukturierten Oberflächen der benachbarten Metallfolie 2a - 2c beziehungsweise Zwischenplatte 9 im Bereich des Reaktionsraumes 5 und/oder des Wärmeträgerraumes 6 einen definierten Spalt vorzusehen. In diesem Fall wird eine Zwischenplatte 9 verwendet, die über den gesamten Bereich oder auch nur einen Teilbereich des Reaktionsraumes 5 und/oder des Wärmeträgerraumes 6 entsprechende Vertiefungen oder Ausnehmungen 10 aufweist. Damit können auf einfache Art und Weise Reaktionsräume 5 und/oder Wärmeträgerräume 6 mit einem definierten Spalt ausgebildet werden.

Ein solches Beispiel zeigt Fig. 5, wobei wiederum gleiche Teile mit gleichen Bezugszeichen gekennzeichnet sind. Abweichend von den bisherigen Ausführungsbeispielen werden hierbei keine mit Strukturen versehene Metallfolien, sondern gewellte Bleche als Platten 2a - 2c verwendet. Die Kanäle 3 werden daher durch die Wellen der Bleche 2a - 2c ausgebildet. Ebenfalls abweichend von den obigen Ausführungsbeispielen ist in Fig. 4 auch die Abfolge der einzelnen Bestandteile und gegebenenfalls auch der Räume 5, 6. Die Strukturierung der Bleche 2a - 2c ist vorzugsweise derart ausgeführt, daß die Wellen aufeinanderfolgender Bleche nicht deckungsgleich verlaufen, sondern sich schneiden. Daher werden aufeinanderfolgende Bleche beim Zusammenbau nicht ineinander geschoben, sondern jeweils ein Wellental des einen Bleches berührt einen Wellenberg des nächsten Bleches, so daß lediglich punktuelle Lötverbindungen entstehen.

Das Katalysatormaterial 4 wird in den Reaktionsraum 5 durch Beschichtung der Bleche 2b, 2c eingebracht. Hierbei sind die lediglich die jeweils dem Reaktionsraum 5 zugewandten Oberflächen der Bleche 2b, 2c beschichtet. Im Ausführungsbeispiel gemäß Fig. 5 bedeutet dies, daß die Unterseite des Bleches 2a und die Oberseite des Bleches 2b im Bereich des Reaktionsraumes 5 mit Katalysatormaterial 4 beschichtet ist. Die beiden Bleche 2a, im Ausführungsbeispiel ganz oben und ganz unten angeordnet, sowie die Randbereiche 11 aller Bleche 2a - 2c, sind nicht mit Katalysatormaterial 4 beschichtet. Somit werden zwischen den Blechen 2a und 2b beziehungsweise zwischen 2c und 2a Wärmeträgerräume 6 ausgebildet. Im Ausführungsbeispiel ist zwischen den Blechen 2a und 2b beziehungsweise zwischen 2c und 2a jeweils eine Lotschicht 7 vorgesehen, so daß sich nach dem Lötprozess - hierbei sammelt sich das Lot an den Berührungspunkten der Bleche - jeweils ein einziger durchgehender Wärmeträgerraum 6 ausbildet. Es ist aber auch möglich, statt dessen ein beidseitig mit einer Lotschicht versehene Zwischenplatte 9

vorzusehen, so daß sich dann jeweils zwei aufeinanderfolgende Wärmeträgerräume 6 ausbilden würden.

Zwischen den beiden mit Katalysatormaterial 4 versehenen Blechen 2b und 2c ist eine beidseitig mit einer Lotschicht 7 versehene Zwischenplatte 9 vorgesehen. Diese Zwischenplatte 9 weist im Bereich des Reaktionsraumes 5 eine Ausnehmung 10 auf. Dadurch wird zwischen den Blechen 2b und 2c ein definierter Spalt ausgebildet. Es wäre aber auch möglich, die mit Lot beschichtete Zwischenplatte 9 durch eine entsprechende einfache Lotschicht 7 zu ersetzen. In diesem Falle würde sich ein solcher Spalt ausbilden. Entscheidend ist nur, daß wiederum im Bereich des Reaktionsraumes 5 keine Lotschicht 7 vorgesehen ist. Analog zu den anderen Ausführungsbeispielen kann auch hier im Reaktionsraum 5 anstelle der Beschichtung das Katalysatormaterial in Form einer Schüttung oder Pellets eingebracht werden.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung eines kompakten katalytischen Reaktors (1), wobei
  - durch Aufeinanderstapeln von zumindest teilweise strukturierten Platten (2a-c) abwechselnd Reaktionsbeziehungsweise Wärmeträgerräume (5, 6) ausgebildet werden,
  - in die Reaktionsräume (5) Katalysatormaterial (4) eingebracht wird,
  - zumindest im Randbereich (8), jedoch nicht im mit Katalysatormaterial (4) versehenen Bereich der Platten (2a-c) eine Lotschicht (7) vorgesehen wird, und wobei
  - die Platten (2a-c) nach dem Aufeinanderstapeln zu einem Katalytischer Reaktor (1) verlötet werden.
2. Verfahren nach Anspruch 1,  
d a d u r c h   g e k e n n z e i c h n e t ,  
daß das Katalysatormaterial (4) in Form einer Schüttung und/oder Pellets oder durch Beschichtung der Platten (2a-c) in die Reaktionsräume (5) eingebracht wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1,  
d a d u r c h   g e k e n n z e i c h n e t ,  
daß Metallfolien oder gewellte Bleche als Platten (2a-c) verwendet werden.
4. Verfahren nach Anspruch 1,  
d a d u r c h   g e k e n n z e i c h n e t ,  
daß das Lot durch Beschichten der Platten (2a-c) oder in Form einer Lotschicht (7) eingebracht wird.

5. Verfahren nach Anspruch 4,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß in die Lotschicht (7) im mit Katalysatormaterial (4)  
versehenen Bereich der Reaktionsräume (5) Ausnehmungen  
eingebracht werden.
6. Verfahren nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die dem Wärmeträgerraum (6) zugewandten Platten (2a-c)  
vollständig mit einer Lotschicht (7) versehen werden.
7. Verfahren nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Platten (2a-c) vor dem Aufeinanderstapeln an den  
Rändern (8) umgebogen werden und daß zumindest diese  
aufgebogenen Randbereiche (11) mit einer Lotschicht (7)  
versehen sind.
8. Verfahren nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß jeweils zwischen zwei strukturierten Platten (2a-c)  
eine unstrukturierte Zwischenplatte (9) vorgesehen wird und  
daß die Lotschicht (7) ausschließlich und beidseitig auf  
die Zwischenplatten (9) aufgebracht wird.
9. Verfahren nach Anspruch 8,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Lotschicht (7) auf der dem mit Katalysatormaterial  
(4) gefüllten Reaktionsraum (5) zugewandten Oberfläche der  
Zwischenplatte (9) eine Ausnehmung (10) aufweist.
10. Verfahren nach Anspruch 8,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Zwischenplatte (9) zur Ausbildung eines definierten  
Spaltes im Bereich des Reaktionsraumes (5) und/oder des  
Wärmeträgerraum (6) eine Vertiefung und/oder Ausnehmung  
aufweist.

Fig. 1

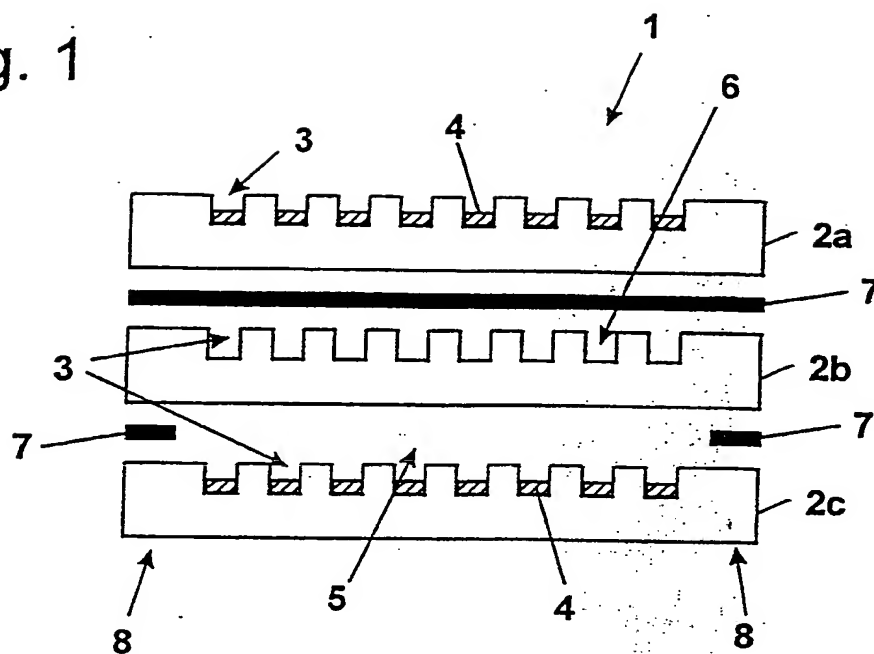


Fig. 2

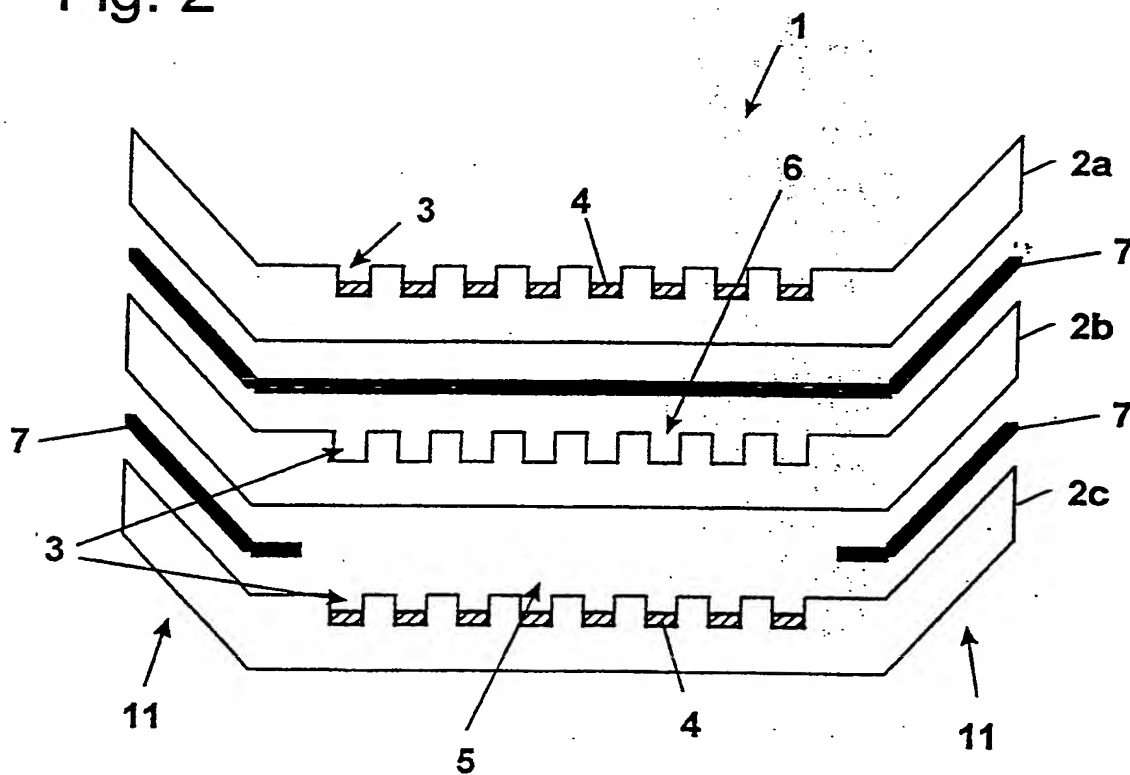
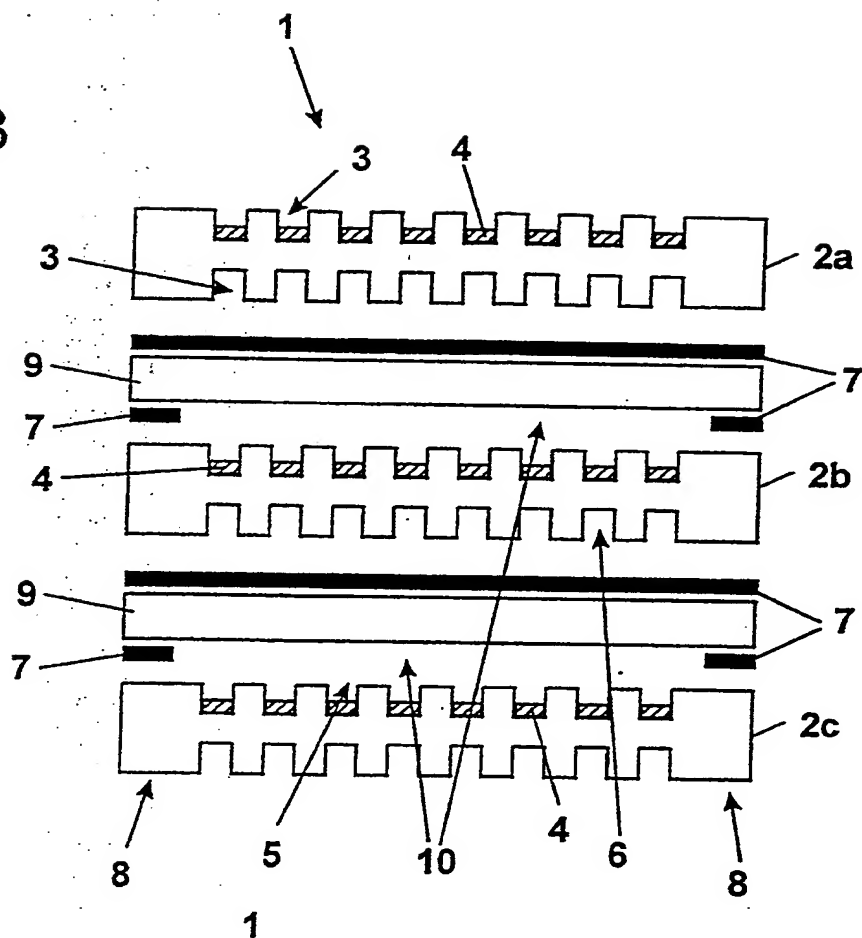


Fig. 3





3/4

Fig. 4

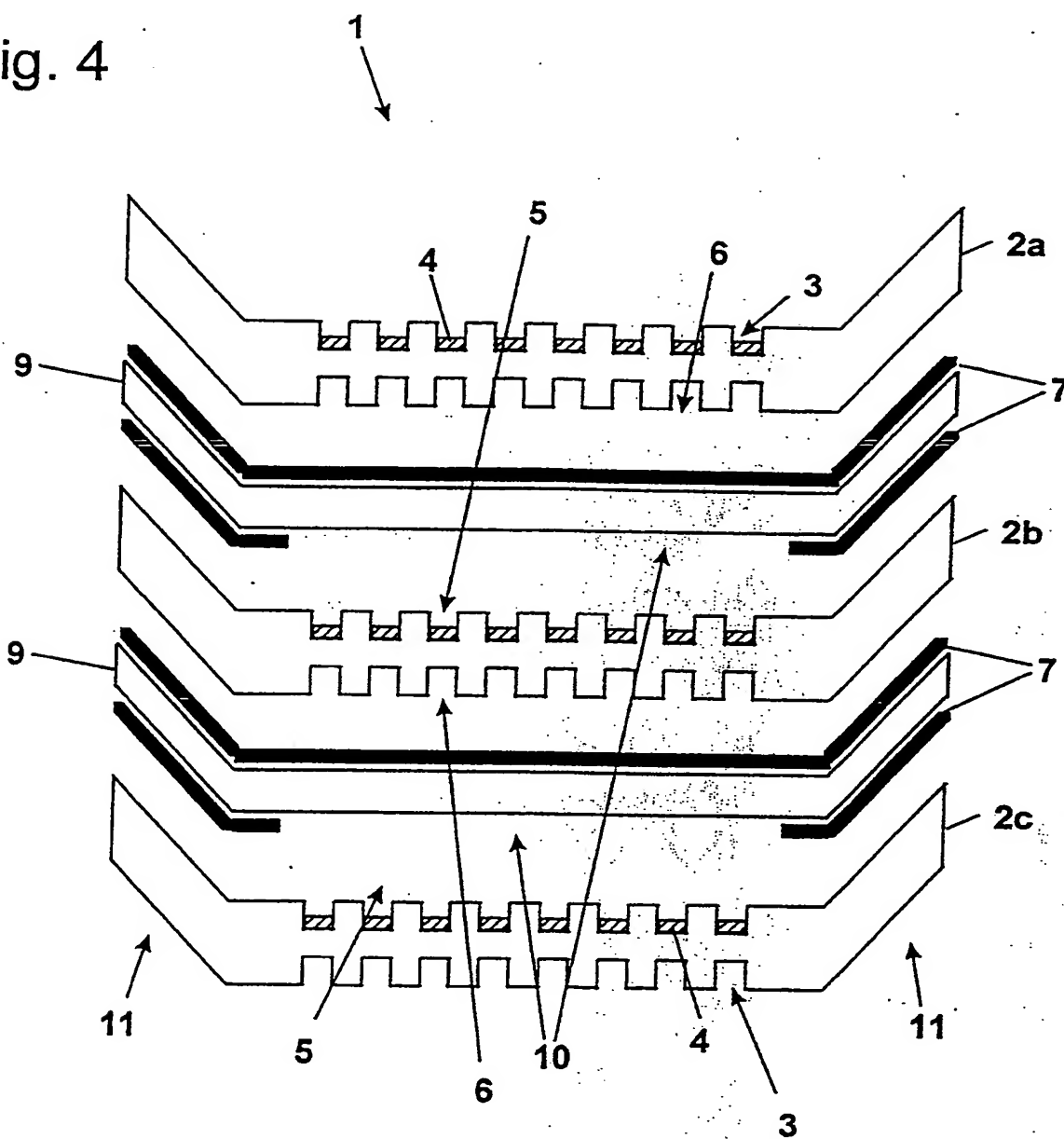
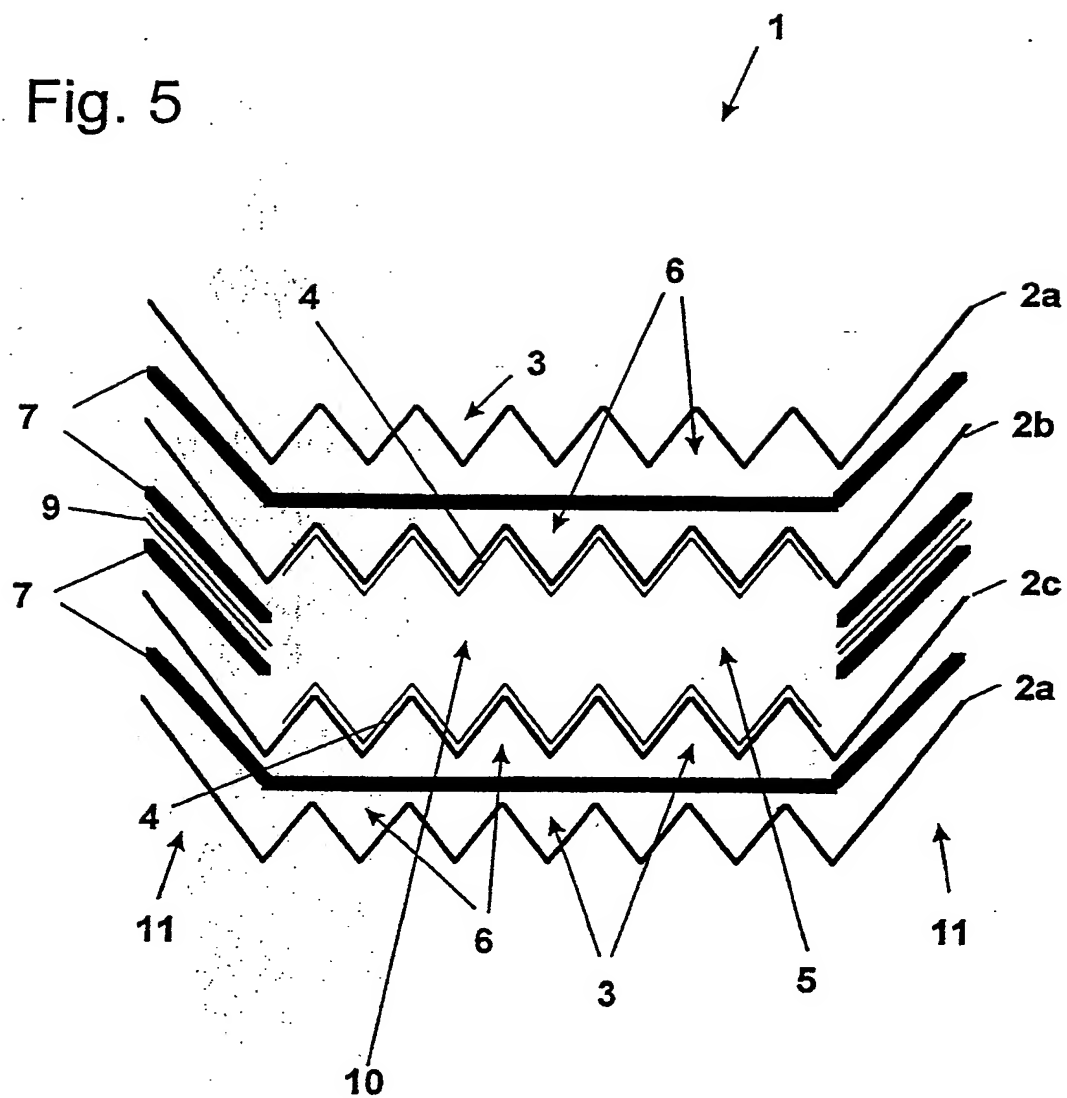


Fig. 5



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
EP 99/03737A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 B01J19/00 B23K1/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 B01J B23K H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 39 26 466 A (MESSERSCHMITT BOELKOW BLOHM) 14 February 1991 (1991-02-14) claims 1-4; figure 1	1-3
A	EP 0 430 184 A (ISHIKAWAJIMA HARIMA HEAVY IND) 5 June 1991 (1991-06-05) abstract; claims 1,18; figure 3	1,2
A	US 5 152 060 A (BICHLER PETER ET AL) 6 October 1992 (1992-10-06) column 3, line 50 - line 54 claims 4,5; figures 3-7	1,8
	--- -/-- ---	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

\*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

\*E\* earlier document but published on or after the international filing date

\*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

\*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

\*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

\*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

\*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

\*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

\*A\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

11 October 1999

Date of mailing of the international search report

21/10/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l Application No

PCT/EP 99/03737

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,A	DE 197 08 472 A (ATOTECH DEUTSCHLAND GMBH) 24 September 1998 (1998-09-24) column 7, line 68 -column 8, line 45 column 9, line 54 -column 11, line 5 column 11, line 31 -column 12, line 16; figures 2,4,5	1-6
P,A	DE 196 54 361 A (BEHR GMBH & CO) 25 June 1998 (1998-06-25) column 5, line 16 - line 48 claims 1-4; figures 1,2	1-3,7

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

EP 99/03737

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 3926466	A	14-02-1991	NONE	
EP 0430184	A	05-06-1991	JP 2099197 C	22-10-1996
			JP 3170301 A	23-07-1991
			JP 8005644 B	24-01-1996
			DE 69003516 D	28-10-1993
			DE 69003516 T	11-05-1994
			KR 9606929 B	25-05-1996
			US 5180561 A	19-01-1993
US 5152060	A	06-10-1992	DE 3709278 A	29-09-1988
			AT 75980 T	15-05-1992
			WO 8806941 A	22-09-1988
			EP 0391895 A	17-10-1990
			JP 2854309 B	03-02-1999
			JP 3500861 T	28-02-1991
			US 5249359 A	05-10-1993
DE 19708472	A	24-09-1998	WO 9837457 A	27-08-1998
DE 19654361	A	25-06-1998	NONE	

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**

IPK 6 B01J19/00 B23K1/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

**B. RESEARCHIERTE GEBIETE**

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 B01J B23K H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

**C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 39 26 466 A (MESSERSCHMITT BOELKOW BLOHM) 14. Februar 1991 (1991-02-14) Ansprüche 1-4; Abbildung 1 ----	1-3
A	EP 0 430 184 A (ISHIKAWAJIMA HARIMA HEAVY IND) 5. Juni 1991 (1991-06-05) Zusammenfassung; Ansprüche 1,18; Abbildung 3 ----	1,2
A	US 5 152 060 A (BICHLER PETER ET AL) 6. Oktober 1992 (1992-10-06) Spalte 3, Zeile 50 - Zeile 54 Ansprüche 4,5; Abbildungen 3-7 ---- -/--	1,8



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&amp;" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

11. Oktober 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/10/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Vlassis, M

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P,A	DE 197 08 472 A (ATOTECH DEUTSCHLAND GMBH) 24. September 1998 (1998-09-24) Spalte 7, Zeile 68 -Spalte 8, Zeile 45 Spalte 9, Zeile 54 -Spalte 11, Zeile 5 Spalte 11, Zeile 31 -Spalte 12, Zeile 16; Abbildungen 2,4,5 -----	1-6
P,A	DE 196 54 361 A (BEHR GMBH & CO) 25. Juni 1998 (1998-06-25) Spalte 5, Zeile 16 - Zeile 48 Ansprüche 1-4; Abbildungen 1,2 -----	1-3,7

# INTERNATIONALE RESEARCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung und zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/03737

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 3926466 A	14-02-1991	KEINE	
EP 0430184 A	05-06-1991	JP 2099197 C	22-10-1996
		JP 3170301 A	23-07-1991
		JP 8005644 B	24-01-1996
		DE 69003516 D	28-10-1993
		DE 69003516 T	11-05-1994
		KR 9606929 B	25-05-1996
		US 5180561 A	19-01-1993
US 5152060 A	06-10-1992	DE 3709278 A	29-09-1988
		AT 75980 T	15-05-1992
		WO 8806941 A	22-09-1988
		EP 0391895 A	17-10-1990
		JP 2854309 B	03-02-1999
		JP 3500861 T	28-02-1991
		US 5249359 A	05-10-1993
DE 19708472 A	24-09-1998	WO 9837457 A	27-08-1998
DE 19654361 A	25-06-1998	KEINE	



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**